

# 特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

（法第 12 条、法施行規則第 56 条）

〔PCT36 条及び PCT 規則 70〕

REC'D 28 NOV 2005

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 62151CT	今後の手続きについては、様式 PCT/IPEA/416 を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 2004/018143	国際出願日 (日.月.年) 06.12.2004	優先日 (日.月.年) 09.12.2003
国際特許分類 (IPC) Int.Cl. H01M8/02, 8/10		
出願人 (氏名又は名称) ニッタ株式会社		

<p>1. この報告書は、PCT35 条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。 法施行規則第 57 条 (PCT36 条) の規定に従い送付する。</p> <p>2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 6 ページからなる。</p> <p>3. この報告には次の附属物件も添付されている。</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> 附属書類は全部で 20 ページである。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面の用紙 (PCT 規則 70.16 及び実施細則第 607 号参照)</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第 I 欄 4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙</p> <p>b. <input type="checkbox"/> 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。 配列表に関する補充欄に示すように、電子形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第 802 号参照)</p> <p>4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第 I 欄 国際予備審査報告の基礎</p> <p><input type="checkbox"/> 第 II 欄 優先権</p> <p><input type="checkbox"/> 第 III 欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成</p> <p><input type="checkbox"/> 第 IV 欄 発明の単一性の欠如</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第 V 欄 PCT35 条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明</p> <p><input type="checkbox"/> 第 VI 欄 ある種の引用文献</p> <p><input type="checkbox"/> 第 VII 欄 国際出願の不備</p> <p><input type="checkbox"/> 第 VIII 欄 国際出願に対する意見</p>
------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------

国際予備審査の請求書を受理した日 22.06.2005	国際予備審査報告を作成した日 10.11.2005	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号	特許庁審査官 (権限のある職員) 前田 寛之 電話番号 03-3581-1101 内線 3477	4 X 2930

様式 PCT/IPEA/409 (表紙) (2005 年 4 月)

## 第 I 欄 報告の基礎

1. 言語に関し、この予備審査報告は以下のものを基礎とした。

- ☒ 出願時の言語による国際出願  
☐ 出願時の言語から次の目的のための言語である \_\_\_\_\_ 語に翻訳された、この国際出願の翻訳文  
☐ 国際調査 (PCT規則12.3(a)及び23.1(b))  
☐ 国際公開 (PCT規則12.4(a))  
☐ 国際予備審査 (PCT規則55.2(a)又は55.3(a))

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条 (PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 2, 4, 6, 16-17, 19-23, 25-32, 34-44, 46-55 ページ、出願時に提出されたもの

第 1, 3, 5, 7-9, 14-15, 18, 24, 33, 45, 56-57 ページ\*, 22.06.2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 \_\_\_\_\_ ページ\*, \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 1, 5 項、出願時に提出されたもの

第 \_\_\_\_\_ 項\*, PCT19条の規定に基づき補正されたもの

第 2-4, 6-11 項\*, 22.06.2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 \_\_\_\_\_ 項\*, \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1/25-25/25 ページ/図、出願時に提出されたもの

第 \_\_\_\_\_ ページ/図\*, \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

第 \_\_\_\_\_ ページ/図\*, \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☐ 補正により、下記の書類が削除された。

- ☒ 明細書 第 10-13, 58 ページ  
☒ 請求の範囲 第 12-32 項  
☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図  
☐ 配列表 (具体的に記載すること) \_\_\_\_\_  
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) \_\_\_\_\_

4. ☒ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則 70.2(c))

- ☒ 明細書 第 4, 6 ページ  
☒ 請求の範囲 第 1, 5 項  
☐ 図面 \_\_\_\_\_ ページ/図  
☐ 配列表 (具体的に記載すること) \_\_\_\_\_  
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) \_\_\_\_\_

\* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 2-11	有
	請求の範囲 1	無
進歩性 (IS)	請求の範囲 6、11	有
	請求の範囲 1-5、7-10	無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲 1-11	有
	請求の範囲	無

2. 文献及び説明 (PCT規則 70.7)

- 文献1: WO 00/44059 A1 (旭硝子株式会社) 2000.07.27 全文、図1-2  
& EP 1154504 A1 all pages
- 文献2: JP 2-168563 A (石川島播磨重工業株式会社) 1990.06.28 特許請求の範囲、第1-8図
- 文献3: 日本国実用新案登録出願61-120977号 (日本国実用新案登録出願公開63-28251号) の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム (石川島播磨重工業株式会社) 1988.02.24 実用新案登録請求の範囲、第1図
- 文献4: JP 2000-243408 A (トヨタ自動車株式会社) 2000.09.08  
【特許請求の範囲】、【0037】-【0039】、【図1】、【図3】、【図6】、【図7】  
& DE 19961496 A1 特許請求の範囲、図1、3、6、7
- 文献5: JP 2003-151572 A (株式会社日立製作所) 2003.05.23 【特許請求の範囲】、【図1】
- 文献6: JP 2000-138067 A (トヨタ自動車株式会社) 2000.05.16  
【特許請求の範囲】、【図1】-【図11】
- 文献7: JP 2001-307747 A (トヨタ自動車株式会社) 2001.11.02  
【特許請求の範囲】、【図1】
- 文献8: JP 2001-357859 A (株式会社リケン) 2001.12.26 【特許請求の範囲】、【図1】
- 文献9: JP 2001-351642 A (株式会社リケン) 2001.12.21 【特許請求の範囲】、【図1】
- 文献10: JP 2003-217611 A (NTT株式会社) 2003.07.31 【特許請求の範囲】、【0021】-【0023】、【図2】

## 補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

## 第 I. 4. 欄の続き

## 明細書第 4、6 ページ

22.06.2005 付けで国際予備審査機関が受理した明細書第 4、6 ページの差替え用紙には「円弧状」と記載されている。

しかしながら、出願時における国際出願には「U 字形状、V 字形状、台形状」の開示はあるものの、「円弧状」については何ら開示されていない。

よって、この報告に添付された明細書第 4、6 ページの補正は、出願時における国際出願の開示の範囲を超えてされたものと認める。

## 請求の範囲第 1、5 項

同様に、22.06.2005 付けで国際予備審査機関が受理した差替え用紙の請求の範囲第 1、5 項には「円弧状」と記載されている。

しかしながら、出願時における国際出願には「U 字形状、V 字形状、台形状」の開示はあるものの、「円弧状」については何ら開示されていない。

よって、この報告に添付された請求の範囲第 1、5 項の補正は、出願時における国際出願の開示の範囲を超えてされたものと認める。

## 補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

## 第 V.2. 欄の続き

## 請求の範囲 1

請求の範囲 1 に記載された発明は、国際調査報告で引用した文献 1 により、新規性及び進歩性を有しない。

文献 1 には、燃料ガスと酸化剤ガスの流路を分離する分離部において、芯材である平板状の金属板 2 表面に、流路が形成された樹脂層 1 a、1 b を設けたセパレータが開示されている。

よって、文献 1 には、請求の範囲 1 に記載された発明が開示されているといえることができる。

## 請求の範囲 2、5

請求の範囲 2、5 に記載された発明は、文献 1、新たに引用する文献 2-3、国際調査報告で引用した文献 4、及び、新たに引用する文献 5-7 により、進歩性を有しない。

文献 2-3 には、断面 U 字状のシール突部を有するシール部と分離部を有するセパレータが開示されているが、いずれの文献にも、流路を形成した樹脂層を分離部に設けること、及び、金属板表面にゴム層を形成すること、が開示されていない。

しかしながら、文献 2-3 記載の発明において、文献 1 に記載されている流路を形成した樹脂層を分離部に設ける構成を採用することに何ら困難性は認められず、加えて、文献 4-7 に開示されているように、当該技術分野では、金属板表面にゴム層を形成することは周知の技術事項に過ぎない。

## 請求の範囲 3-4

請求の範囲 3-4 に記載された発明は、文献 1-7 及び新たに引用する文献 8-9 により、進歩性を有しない。

文献 8-9 に開示されているように、燃料電池用セパレータにおいて、電解質組立体と接触する領域に高導電層を形成して接触抵抗を小さくすることは、当該技術分野においては周知の技術事項であるといえる。

## 請求の範囲 6、11

請求の範囲 6、11 に記載された発明は、国際調査報告で引用したいずれの文献に対しても、新規性及び進歩性を有する。

いずれの文献にも、請求の範囲 6、11 に記載された発明が開示されておらず、当業者といえども容易に着想し得たということとはできない。

## 請求の範囲 7

請求の範囲 7 に記載された発明は、文献 1-9 により、進歩性を有しない。

文献 8-9 には、カーボンで高導電層を形成することが開示されており、高導電層をカーボンで形成する際に、カーボン分散液を吹きつけて形成することに何ら困難性は見当たらない。

## 補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

## 第 V.2. 欄の続き

## 請求の範囲 8

請求の範囲 8 に記載された発明は、文献 1－9 及び新たに引用する文献 10 により、進歩性を有しない。

文献 4－7、10 に開示されているように、当該技術分野では、金属板表面に被覆層を形成することは周知の技術事項に過ぎない。

## 請求の範囲 9

請求の範囲 9 に記載された発明は、文献 1－10 により、進歩性を有しない。

文献 4、10 には、接着層として機能する層を介して金属板表面に被覆層を形成することが開示されている。

## 請求の範囲 10

請求の範囲 10 に記載された発明は、文献 1－10 により、進歩性を有しない。

文献 10 には、接着層として機能するポリアニリンからなる薄膜層を介して金属板表面に被覆層を形成することが開示されている。

## 明 細 書

セパレータ

### 技術分野

[0001] 本発明は、スタック型の固体高分子型燃料電池に備えられるセパレータに関する。

### 背景技術

[0002] 従来から、限りあるエネルギー資源の有効利用や、地球温暖化防止のための省エネルギーの必要性は広く認識されている。今日では、火力発電によって、熱エネルギーを電力エネルギーに変換する形でエネルギー需要が賄われている。

しかしながら、火力発電に必要な石炭および石油は埋蔵量が有限な資源であり、これらに代わる新たなエネルギー資源が必要となっている。そこで注目されているのが水素を燃料にして化学発電する燃料電池である。

燃料電池は、2つの電極と電極間に挟まれた電解質とを有している。陰極では、供給された水素がイオン化して水素イオンとなり電解質中を陽極に向かって移動する。陽極では、供給された酸素と電解質中を移動してきた水素イオンとが反応して水を発生する。水素がイオン化したときに発生した電子が、陰極から配線を通して陽極へと移動することで電流が流れ、電気が発生する。

燃料電池は、主に電解質の違いから4種類に分類される。イオン導電性セラミックスを電解質に用いた固体電解質型燃料電池(SOFC)、水素イオン導電性高分子膜を電解質に用いた固体高分子型燃料電池(PEFC)、高濃度リン酸を電解質に用いたリン酸型燃料電池(PAFC)、アルカリ金属炭酸塩を電解質に用いた熔融炭酸型燃料電池(MCFC)の4種類である。この中でも特に作動温度が80℃と低い固体高分子型燃料電池(PEFC)の開発が進んでいる。

固体高分子型燃料電池の構造は、表面に触媒電極を設けた電解質層と、電解質層を両側から挟み、水素および酸素を供給するための溝を設けたセパレータと、電極発生した電気を回収する集電板などを含んで構成される。電解質層と同じく、セパレータについても改良が重ねられている。

同様に、プレス加工によって、ガス流路を形成している。

また、プレス加工以外では、特開2001-767748号公報記載の固体高分子型燃料電池のセパレータが、導電基材に導電性材料を印刷することによってガス流路を形成している。具体的には、導電基材としては、炭素粉末および熱硬化性樹脂を主成分とする板状成形体が用いられ、導電性材料としては、炭素粉末を主成分として含むカーボンペーストが用いられる。

ゴムからなるセパレータは、ガス透過性は低い、剛性が低く、高熱環境化では劣化するため、そりおよび変形量も大きく、長時間の使用に耐えられないという問題がある。

また、今後のセパレータには、薄型軽量化が要求され、その実現のために金属基板の薄型軽量化、ガス流路の微細化が必要となるが、特開平8-180883号公報および特開2003-297383号記載のセパレータのようにプレス加工によってガス流路を形成しようとする、反りおよび歪みが大きく寸法精度が悪くなり、この寸法精度の悪化により歩留まりが低下する。

特開2001-767748号公報記載のセパレータは、カーボンペーストを印刷することによりガス流路の微細化には対応可能となっているが、基材が熱硬化性樹脂であるため、基材自体の寸法安定性が悪いという問題が残る。

さらに、上記公報記載のセパレータを含む従来のセパレータは、流体漏れを防ぐために、電解質層との間にガスケットを備える必要がある。

#### 発明の開示

[0003] 本発明の目的は、信頼性および耐食性に優れたセパレータを提供することである。

本発明は、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、

燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、

外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有し、

前記分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層が形成され、

前記樹脂層には、前記流路が設けられ、

前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極



形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有し、

前記シール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面が円弧状であることを特徴とするセパレータである。

本発明に従えば、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであり、セパレータは、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部を有する。

分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層、たとえばゴム層が形成され、ゴム層には前記流路が設けられる。

また、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部を有している。前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有する。このシール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面が円弧状である。

これにより、平板状の金属板を芯材とすることで、ゴムのみからなるセパレータに比べ、そりおよび変形量が少なく、信頼性に優れたセパレータを提供することができる。芯材である金属板は、樹脂層で被覆されているので、水素ガスおよび酸素ガスならびに冷却水による腐食などの表面変化を防止することができる。

さらに、従来必要であった、Ｏリング、ガスケットなどのシール部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減することができる。

また本発明は、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、

燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、

外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有し、

前記分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層が形成され、

前記樹脂層には、前記流路が設けられ、

前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組

立体に圧接されるように構成されたシール突部を有し、

前記シール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面がU字形状またはV字形状であることを特徴とするセパレータである。

本発明に従えば、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであり、セパレータは、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部を有する。

分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層、たとえばゴム層が形成され、ゴム層には前記流路が設けられる。

また、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部を有している。前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有する。このシール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面がU字形状またはV字形状である。

これにより、平板状の金属板を芯材とすることで、ゴムのみからなるセパレータに比べ、そりおよび変形量が少なく、信頼性に優れたセパレータを提供することができる。芯材である金属板は、樹脂層で被覆されているので、水素ガスおよび酸素ガスならびに冷却水による腐食などの表面変化を防止することができる。

さらに、従来必要であった、Oリング、ガスケットなどのシール部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減することができる。

また本発明は、前記樹脂層表面に、前記樹脂層の導電性より高い導電性を有する高導電層を形成したことを特徴とする。

本発明に従えば、セパレータと電解質組立体との接触抵抗を低下させることができる。

また本発明は、前記高導電層は、少なくとも前記樹脂層が前記電解質組立体と接触する領域に形成したことを特徴とする。

本発明に従えば、少なくとも樹脂層が電解質組立体と接触する領域に、高導電層を形成するので、より効果的にセパレータと電解質組立体との接触抵抗を低下させる

ことができる。

また本発明は、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、

燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、

外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有し、

前記分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層および樹脂層の導電性より高い導電性を有する高導電層が形成され、

前記高導電層には、前記流路が設けられ、

前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有し、

前記シール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面が円弧状であることを特徴とするセパレータである。

本発明に従えば、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであり、セパレータは、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部とを有する。

分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層および樹脂層の導電性より高い導電性を有する高導電層が形成される。高導電層には、前記流路が設けられる。

また、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部を有している。前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有する。このシール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面が円弧状である。

これにより、平板状の金属板を芯材とすることで、ゴムまたは熱硬化性ポリマーのみからなるセパレータに比べ、そりおよび変形量が少なく、信頼性に優れたセパレータを提供することができる。芯材である金属板は、ゴム層または熱硬化性ポリマー層で被覆されているので、水素ガスおよび酸素ガスならびに冷却水による腐食などの表

面変化を防止することができる。さらに、電解質組立体との接触抵抗を低下させるとともに、電流経路全体の抵抗を大幅に低下させることができるので、電力の回収率を向上することができる。

さらに、従来必要であった、Oリング、ガスケットなどのシール部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減することができる。

また本発明は、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、

燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、

外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有し、

前記分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層および樹脂層の導電性より高い導電性を有する高導電層が形成され、

前記高導電層には、前記流路が設けられ、

前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有し、

前記シール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面がU字形状またはV字形状であることを特徴とするセパレータである。

本発明に従えば、電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであり、セパレータは、燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部とを有する。

分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層および樹脂層の導電性より高い導電性を有する高導電層が形成される。高導電層には、前記流路が設けられる。

また、外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部を有している。前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有する。このシール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面がU字形状またはV字形

状である。

これにより、平板状の金属板を芯材とすることで、ゴムまたは熱硬化性ポリマーのみからなるセパレータに比べ、そりおよび変形量が少なく、信頼性に優れたセパレータを提供することができる。芯材である金属板は、ゴム層または熱硬化性ポリマー層で被覆されているので、水素ガスおよび酸素ガスならびに冷却水による腐食などの表面変化を防止することができる。さらに、電解質組立体との接触抵抗を低下させるとともに、電流経路全体の抵抗を大幅に低下させることができるので、電力の回収率を向上することができる。

さらに、従来必要であった、Oリング、ガスケットなどのシール部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減することができる。

また本発明は、前記高導電層は、カーボン粒子の分散液を、吹きつけることで形成されるカーボンによる薄膜であることを特徴とする。

本発明に従えば、カーボン粒子の分散液を、吹きつけることでカーボンによる薄膜を形成する。これにより非常に簡単な工程で高導電層を形成することができる。

また本発明は、前記金属板は、被覆層で被覆されていることを特徴とする。

また本発明は、前記被覆層は、接着層を介して金属板表面上に形成したことを特徴とする。

また本発明は、前記接着層は、トリアジンチオールまたはポリアニリンを金属板表面に拡散させることで形成することを特徴とする。

本発明に従えば、接着層を介して被覆層を金属板表面上に形成する。より詳細には、金属板表面に対してトリアジンチオール類に代表される導電性カップリング剤によるコーティング、ポリアニリン類に代表される導電性ポリマーによるドーピング処理されたコーティングを行うことにより、金属表面に接着層となる拡散層を形成する。金属表面に拡散したトリアジンチオール類、ポリアニリン類は、導電性を示すので、樹脂層との導電性を確保し、発生した直流電力を直流電流として取り出すことができる。

また本発明は、前記被覆層は、導電性を有するゴムまたは合成樹脂からなり、

導電性インクは、ゴムまたは合成樹脂を形成するための硬化性モノマーまたは硬化性オリゴマーからなるビヒクルと、

金属化合物または炭素系材料からなる導電性フィラーとを含むことを特徴とする。

本発明に従えば、導電性を有するゴムまたは合成樹脂によって金属板の表面を被覆することで、表面変化を防止するとともに金属板と樹脂層との導電性を確保することができる。また樹脂層は、ゴムまたは合成樹脂を形成するための硬化性モノマーまたは硬化性オリゴマーからなるビヒクルと、金属化合物または炭素系材料からなる導電性フィラーとを含む導電性インクを用いて印刷することで実現できる。

### 図面の簡単な説明

[0004] 本発明の目的、特色、および利点は、下記の詳細な説明と図面とからより明確になるであろう。

図1は、固体高分子型燃料電池 (Polymer Electrolyte Fuel Cell、略称PEFC) 100を展開した状態で模式的に示した斜視図である。

図2は、セパレータ1を含む単位電池101の水平断面図である。

図3は、ばね力が発生するためのシール部14の形状を説明する図である。

図4は、第1の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図5は、第1の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図6は、第2の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図7は、第2の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図8は、第3の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図9は、第4の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図10は、第5の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図11は、第5の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図12は、セパレータの製造方法を示す製造工程図である。

図13は、第6の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図14は、第6の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図15は、第7の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図16は、第8の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図17は、第8の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図18は、セパレータの製造方法を示す製造工程図である。

図19は、第9の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図20は、第9の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。

図21は、第10の実施形態における分離部13の要部拡大図である。

図22は、セパレータの製造方法を示す製造工程図である。

図23は、他の形状のセパレータ1を含む単位電池101の水平断面図である。

図24は、他の形状のセパレータ1を含む単位電池101の水平断面図である。

図25は、実施例7によって得られたセパレータ1の概略断面図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

- [0005] 図1は、固体高分子型燃料電池(Polymer Electrolyte Fuel Cell、略称PEFC)100を展開した状態で模式的に示した斜視図である。PEFC100は、セパレータ1、燃料電池セル2、集電板3、絶縁シート4、エンドフランジ5、電極配線12を有する。PEFC100は、高電圧、高出力を得るために、複数の燃料電池セル2を直列に接続した、いわゆるスタック状態で構成される。このスタック状態を構成するためには、燃料電池セル2間にセパレータを配置し、各燃料電池セル2に対して水素および酸素の供給と、発生した電気の回収とを行う。したがって、図1に示すように、燃料電池セル2とセパレータ1とが交互に配置する。この配置の最外層にはセパレータ1が配置され、セパレータ1のさらに外側には集電板3が設けられる。集電板3は、各セパレータ1で回収された電気を集めて取り出すために設けられ、電極配線12が接続されている。絶縁シート4は、集電板3とエンドフランジ5との間に設けられ、集電板3からエンドフラ



池セル2を挟んで対向する流路溝が、異なるガスのガス流路を形成するように設定する。たとえば、図2に示すように、燃料電池セル2を挟んで対向するガス流路は、一方が水素ガス流路16であり、もう一方が酸素ガス流路17である。

以上のようにセパレータ1を配置し、ガス流路を設定することで、電力を発生させることができる。

なお、流路溝と触媒電極21とによって形成された流路には、水素ガスおよび酸素ガスに限らず、冷却水を流してもよい。冷却水を流す場合は、燃料電池セル2を挟んで対向する流路溝のいずれにも流すことが好ましい。

セパレータ1の芯材として、平板状の金属薄板を用いる。たとえば、鉄、アルミニウム、チタンなどの金属薄板、特にステンレス(たとえばSUS304など)鋼板、SPCC(一般用冷間圧延鋼板)、耐食性鋼板が好ましい。ステンレス鋼板については、表面処理されたものを使用することができる。たとえば、表面を酸洗処理、電解エッチング処理したもの、導電性介在物を含むもの、BA皮膜を形成したもの、イオンプレーティング加工により導電性化合物をコーティングしたものなどが使用できる。

シール部14には、触媒電極21の形成面に平行に延びるシール突部が形成される。このシール突部は、ガスの流れ方向に垂直な断面がU字形状またはV字形状となっている。セパレータ1の芯材を金属薄板とすることで、シール突部の頂部18は、ばね力によって、露出した高分子膜20に圧接される。この圧接位置でシールされ、水素ガスおよび酸素ガスの漏出を防ぐことができる。また、シール突部をU字形状またはV字形状とすることで、頂部18の膜接触面積を小さくし、Oリングと同様の高圧シールを実現している。

シール突部の頂部18を、ばね力によって高分子膜20に圧接するには、高分子膜20と接触しない状態、すなわちPEFC1を組み立てる前の状態のセパレータ1において、シール突部の頂部18の位置が、PEFC1が組み立てられ、高分子膜20と接触する位置よりさらに高分子膜20側となるように予めシール部14を形成する。具体的には、図3Aに示すように、PEFC1が組み立てられた状態では、シール突部の頂部18の位置は、触媒電極21との仮想接触面Aを基準とすると、触媒電極21との接触面と頂部18との距離が触媒電極21の厚み $t_1$ となるような位置になる。したがって、PEF

プロピレン共重合体)などにカーボンフィラーを添加したものが好ましい。

本実施形態では、従来のプレス加工ではなく、印刷によって流路溝が設けられた樹脂層42を形成する。樹脂層42は、被覆層41と同様のゴムまたは合成樹脂を用いることができ、特にゴムとしては、ポリイソブチレンなどが好ましく、合成樹脂としては、エポキシ樹脂、アクリル樹脂などが好ましい。また、樹脂層42は、導電性を有することが必要であるとともに、印刷によって形成可能である必要がある。詳細については後述するが、硬化性モノマーまたは硬化性オリゴマーからなるビヒクルと、金属化合物または炭素系材料からなる導電性フィラーとを含む導電性インクを調製し、所定の印刷方式で被覆層41上にパターン印刷を行い、樹脂層42を形成する。

図11は、第5の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。シール部14では、被覆層41が高分子膜20に接触してシールしている。シール部14は、プレス加工によって形成される。

図12は、セパレータの製造方法を示す製造工程図である。

本製造工程は、基板処理工程、インク調製工程、樹脂層印刷工程、樹脂層硬化工程およびシール部形成工程を含む。

印刷によって、図2に示したような分離ブロック形状を実現するためには、印刷されたインク厚みがおおよそ $300\mu\text{m}\sim 700\mu\text{m}$ となるような厚膜印刷を行う必要がある。また、樹脂層42が導電性を有するために導電性フィラーを多量に含む必要がある。

印刷作業性からすれば、インクの粘度は低いほうがよいが、上記のような必要性から、比較的高い粘度のインクを用いなければならない。したがって、要求される電気特性および構造特性を実現するためには、インク、印刷方式および硬化処理の組み合わせが重要となる。

ステップS1の基板処理工程では、基板としてステンレス鋼板などの金属薄板40を用いる場合に、被覆層41との導電性を確保するために、金属薄板40の表面をエッチングなどによって不動態膜を除去し、被覆層41を形成する。詳細には、所定の外形および厚み方向のガス経路を得るために、型抜き加工を行い、型抜き加工が施された金属薄板の表面に、予め導電性のカーボンフィラーなどを含有させた液状導電性ゴムをコーティングするか、グリーンシート状導電性ゴムを積層する。加熱による被

で導電性グリーンシートに凹凸を成型して樹脂層42を形成する。

図17は、第8の実施形態におけるシール部14の要部拡大図である。シール部14では、金属薄板40が高分子膜20に接触してシールしている。シール部14は、プレス加工によって形成される。

図18は、セパレータの製造方法を示す製造工程図である。

本製造工程は、基板処理工程、組成物調製工程、積層工程、成型工程、成型層硬化工程およびシール部形成工程を含む。

スタンプを用いた成型によって、図2に示したような分離ブロック形状を実現するためには、成型された樹脂層の厚みがおおよそ $300\mu\text{m}$ ～ $700\mu\text{m}$ となるような厚膜を形成必要がある。また、樹脂層42が導電性を有するために導電性フィラーを多量に含む必要がある。

厚膜の必要性から、高粘度の組成物を用いなければならない。したがって、要求される電気特性および構造特性を実現するためには、導電性グリーンシートを形成するための組成物が重要となる。

ステップS11の基板処理工程では、基板としてステンレス鋼板などの金属薄板40を用いる場合に、被覆層31との導電性を確保するために、金属薄板40の表面をエッチングなどによって不動態膜を除去し、接着層43を形成する。詳細には、所定の外形および厚み方向のガス経路を得るために、型抜き加工を行い、型抜き加工が施された金属薄板の表面に、トリアジンチオール類に代表される導電性カップリング剤によるコーティング、ポリアニリン類に代表される導電性ポリマーによるドーピング処理されたコーティングを行う。

また、ステップS12の組成物調製工程では、後工程の積層工程で用いる導電性グリーンシート用組成物(以下では単に「導電性組成物」と呼ぶ)を調製する。

低コスト生産を実現するためには、原材料のみならず、加工工程が量産性に富むものであることが望ましい。したがって、導電性組成物としては、液状で反応性を有するバインダに多量の導電性フィラーを配合し、硬化を促進するための重合触媒および他の添加剤を含むことが望ましい。

バインダとしては、樹脂層42が、ゴムまたは合成樹脂からなることから、これらを実

BFシリーズ) 300重量部

重合触媒:ビスアシルフォスフィンオキシド(チバ社製、品名 Irgacure819) 1. 3重量部、トリアリルサルフォニウム6フッ化リン(ダウケミカル社製、品名 CyracureUVI-6990) 1. 5重量部

・硬化条件

光硬化:メタルハライドランプを用いて800mW/cm<sup>2</sup>で3秒間照射

熱硬化:80℃～100℃で10分間

各実施例の機械特性および電気特性を表2に示す。

[表2]

	固有体積抵抗値 [mΩ・cm]	接触抵抗値 [mΩ・cm <sup>2</sup> ]	硬度 [ショアD]	層厚み [μm]
実施例 4	2 3	8	5 6	4 0 0
実施例 5	1 7	1 1	7 9	4 0 0
実施例 6	1 9	1 0	6 5	4 0 0

なお、接触抵抗値は、樹脂層印刷工程後の印刷インク層がウェット状態のときに、導電性カーボンブラック(東海カーボン製、品名 # 5500)のエチルアルコール分散液をスプレーにより、乾燥膜厚が2～3μmの厚みとなるように吹きつけ、その後硬化させることで高導電層を形成したものをを用いて測定した。

(特性評価方法)

固有体積抵抗値:4探針法(JIS K7194)準拠

接触抵抗値 :電気抵抗計(オームメータ)

硬度 :微小硬度計による測定値を[ショアD]に換算

実施例4～6によって製造したセパレータは、未硬化部もなく均質であり、スタンプからの転写性も良好であった。また、表2に示すように、セパレータとして十分に機能する機械特性および電気特性が得られた。

図22は、セパレータの製造方法を示す製造工程図である。

本実施形態では、導電性グリーンシートを用いるのではなく、金属薄板表面に導電性スラリーを塗布し、乾燥させて塗布層を形成した後、スタンプによって塗布層に凹凸を成型して流路溝が設けられた樹脂層42を形成する。樹脂層42は、導電性を有

接する凸部の幅 $a=2.0\text{mm}$ 、流体流路となる凹部の幅 $b=2.0\text{mm}$ 、凸部の厚み $c=0.45\text{mm}$ 、凹部の厚み $=0.1\text{mm}$ であった。また、流路となる凹部はその断面が逆台形上となり底面と側面とのなす角度  $\theta = 135^\circ$  であった。

実施例7～9によって製造したセパレータは、未硬化部もなく均質であり、スタンパからの転写性も良好であった。また、表3に示すように、セパレータとして十分に機能する機械特性および電気特性が得られた。

本発明は、その精神または主要な特徴から逸脱することなく、他のいろいろな形態で実施できる。したがって、前述の実施形態はあらゆる点で単なる例示に過ぎず、本発明の範囲は特許請求の範囲に示すものであって、明細書本文には何ら拘束されない。さらに特許請求の範囲に属する変形や変更は全て本発明の範囲内のものである。

#### 産業上の利用可能性

[0006] 以上のように本発明によれば、平板状の金属板を芯材とすることで、ゴムのみからなるセパレータに比べ、そりおよび変形量が少なく、信頼性に優れたセパレータを提供することができる。芯材である金属板は、樹脂層で被覆されているので、水素ガスおよび酸素ガスならびに冷却水による腐食などの表面変化を防止することができる。

さらに、従来必要であった、Oリング、ガスケットなどのシール部材を必要とせず、燃料電池の部材点数を削減することができる。

また本発明によれば、セパレータと電解質組立体との接触抵抗を低下させることができる。

また本発明によれば、少なくとも樹脂層が電解質組立体と接触する領域に、高導電層を形成するので、より効果的にセパレータと電解質組立体との接触抵抗を低下させることができる。

また本発明によれば、カーボン粒子の分散液を、吹きつけることでカーボンによる薄膜を形成する。これにより非常に簡単な工程で高導電層を形成することができる。

また本発明によれば、分離部とシール部とが一体形成されるので、燃料電池の製造工程を短縮することができる。

また本発明によれば、樹脂層は、ゴムまたは合成樹脂を形成するための硬化性モノ

マーまたは硬化性オリゴマーからなるビヒクルと、金属化合物または炭素系材料からなる導電性フィラーとを含む導電性インクを用いて印刷することで実現できる。

## 請求の範囲

- [1] (補正後) 電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、  
燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、  
外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有し、  
前記分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層が形成され、  
前記樹脂層には、前記流路が設けられ、  
前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有し、  
前記シール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面が円弧状であることを特徴とするセパレータ。
- [2] (補正後) 電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、  
燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、  
外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有し、  
前記分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層が形成され、  
前記樹脂層には、前記流路が設けられ、  
前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有し、  
前記シール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面がU字形状またはV字形状であることを特徴とするセパレータ。
- [3] (補正後) 前記樹脂層表面に、前記樹脂層の導電性より高い導電性を有する高導電層を形成したことを特徴とする請求項1または2記載のセパレータ。
- [4] (補正後) 前記高導電層は、少なくとも前記樹脂層が前記電解質組立体と接触する領域に形成したことを特徴とする請求項3記載のセパレータ。
- [5] (補正後) 電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複

数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、  
燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、  
外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有し、  
前記分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層および樹脂層の導電性より高い導電性を有する高導電層が形成され、  
前記高導電層には、前記流路が設けられ、  
前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有し、  
前記シール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面が円弧状であることを特徴とするセパレータ。

- [6] (補正後) 電解質媒体を含有した電解質層の厚み方向表面に触媒電極を設けた複数の電解質組立体間に介在されるセパレータであって、  
燃料ガスおよび酸化剤ガスの流路を分離する分離部と、  
外周部に設けられ、燃料ガスおよび酸化剤ガスの漏出を防ぐシール部とを有し、  
前記分離部では、芯材である平板状の金属板表面に、樹脂層および樹脂層の導電性より高い導電性を有する高導電層が形成され、  
前記高導電層には、前記流路が設けられ、  
前記シール部は、金属板表面にゴム層を形成してなり、電解質組立体の触媒電極形成面に平行に延びるシール突部であって、その頂部がばね力によって電解質組立体に圧接されるように構成されたシール突部を有し、  
前記シール突部の前記燃料ガスおよび酸化剤ガスの流れ方向に垂直な断面がU字形状またはV字形状であることを特徴とするセパレータ。

- [7] (補正後) 前記高導電層は、カーボン粒子の分散液を、吹きつけることで形成されるカーボンによる薄膜であることを特徴とする請求項3～6のいずれか1つに記載のセパレータ。

- [8] (補正後) 前記金属板は、被覆層で被覆されていることを特徴とする請求項1～7のいずれか1つに記載のセパレータ。



- [9] (補正後)前記被覆層は、接着層を介して金属板表面上に形成したことを特徴とする請求項8記載のセパレータ。
- [10] (補正後)前記接着層は、トリアジンチオールまたはポリアニリンを金属板表面に拡散させることで形成することを特徴とする請求項9記載のセパレータ。
- [11] (補正後)前記被覆層は、導電性を有するゴムまたは合成樹脂からなり、  
導電性インクは、ゴムまたは合成樹脂を形成するための硬化性モノマーまたは硬化性オリゴマーからなるビヒクルと、  
金属化合物または炭素系材料からなる導電性フィラーとを含むことを特徴とする請求項8～10のいずれか1つに記載のセパレータ。
- [12] (削除)
- [13] (削除)
- [14] (削除)
- [15] (削除)
- [16] (削除)
- [17] (削除)
- [18] (削除)
- [19] (削除)
- [20] (削除)
- [21] (削除)
- [22] (削除)
- [23] (削除)
- [24] (削除)
- [25] (削除)
- [26] (削除)
- [27] (削除)
- [28] (削除)
- [29] (削除)
- [30] (削除)

[31] (削除)

[32] (削除)